

Rec'd JPO

28 FEB 2005

10/525738

特許協力条約

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]

RECEIVED

05 MAR 2004

WIPO PCT

出願人又は代理人 の書類記号	E 05110 PCT		今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/IPEA/416）を参照すること。
国際出願番号 PCT/JPO3/07460	国際出願日 (日.月.年)	12.06.2003	優先日 (日.月.年) 30.08.2002
国際特許分類 (IPC) Int. C17 C22C45/00, C22C9/00			
出願人（氏名又は名称） 科学技術振興事業団			

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。

この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関に対して訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面も添付されている。
 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)
 この附属書類は、全部で 5 ページである。

3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- I 国際予備審査報告の基礎
- II 優先権
- III 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV 発明の単一性の欠如
- V PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ある種の引用文献
- VII 国際出願の不備
- VIII 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 03.09.2003	国際予備審査報告を作成した日 18.02.2004
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 河野 一夫 電話番号 03-3581-1101 内線 3435
	4K 9833

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。
PCT規則70.16, 70.17)

出願時の国際出願書類

明細書 第 1-6, 8, 12 ページ、
明細書 第 7, 9-11 ページ、
明細書 第 _____ ページ、

出願時に提出されたもの
国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
付の書簡と共に提出されたもの

請求の範囲 第 _____ 項、
請求の範囲 第 _____ 項、
請求の範囲 第 1, 2 項、
請求の範囲 第 _____ 項、

出願時に提出されたもの
PCT19条の規定に基づき補正されたもの
国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
付の書簡と共に提出されたもの

図面 第 1-3 ページ/~~図~~、
図面 第 _____ ページ/~~図~~、
図面 第 _____ ページ/~~図~~、

出願時に提出されたもの
国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
付の書簡と共に提出されたもの

明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、
明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、
明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、

出願時に提出されたもの
国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- 國際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
 PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- この国際出願に含まれる書面による配列表
 この国際出願と共に提出された磁気ディスクによる配列表
 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された磁気ディスクによる配列表
 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
 書面による配列表に記載した配列と磁気ディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

明細書 第 _____ ページ
 請求の範囲 第 _____ 項
 図面 図面の第 _____ ページ/~~図~~

5. この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲 請求の範囲	1, 2	有 無
進歩性 (I S)	請求の範囲 請求の範囲	1, 2	有 無
産業上の利用可能性 (I A)	請求の範囲 請求の範囲	1, 2	有 無

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

文献1 : WO 02/053791 A1 (科学技術振興事業団)
2002. 07. 11

文献2 : JP 9-20968 A (財団法人電気磁気材料研究所)
1997. 01. 21

文献3 : WO 00/26425 A1 (科学技術振興事業団)
2000. 05. 11

請求の範囲1, 2に記載された発明は、国際調査報告で引用された何れの文献にも開示されておらず、新規性を有する。

特に、Cu-(Zr, Ti)系ガラス合金に所定量のAlやGaを添加することで、ガラス形成能、強度及びヤング率の増大を図ることに関しては、何れの文献にも開示されていない。

1 以下とする。

さらに、5原子%までのAg、Pd、Au、Pt元素の添加によって、過冷却液体域の
2 広さは増大するが、5原子%を超えると非晶質形成能力が低下するので、添加す
る場合は5原子%以下とする。これらの付加的な元素とAl、Ga元素量の総量、す
5 なわち上記の組成式で $b + c + d + e$ は15原子%以下、より好ましくは10原
子%以下とする。総量が15原子%を超えると、ガラス形成能の低下が好ましく
ない程度になる。

本発明のCu基非晶質合金は、溶融状態から公知の単ロール法、双ロール法、
回転液中紡糸法、アトマイズ法などの種々の方法で冷却固化させ、薄帯状、フィ
10 ラメント状、粉粒体状の非晶質固体を得ることができる。また、本発明のCu基
非晶質合金は大きな非晶質形成能を有するため、上述の公知の製造方法のみなら
ず、溶融金属を金型に充填鋳造することにより任意の形状の非晶質合金を得るこ
ともできる。例えば、代表的な金型鋳造法においては、合金を石英管中でアルゴ
ン霧囲気中に溶融した後、溶融金属を0.5～1.5 Kg·f/cm²の噴出圧
15 で銅製の金型内に充填凝固することにより非晶質合金塊を得ることができる。
更に、ダイカストキャスティング法及びスクイズキャスティング法などの製造方
法を適用することもできる。

(実施例)

以下、本発明の実施例について説明する。表1に示す合金組成からなる材料（
20 実施例1～22）について、アーク溶解法により母合金を溶製した後、単ロール液体急冷法により約20μmの薄帯試料を作製した。そして、薄帯試料のガラス遷移温度（T_g）、結晶化開始温度（T_x）を示差走査熱量計（DSC）より測定した。こ

(表1)

	合金組成 (at%)	T _g (K)	T _x (K)	T _x -T _g (K)	T _g /T _m	V _f -Amo.
実施例 1	Cu ₆₀ Zr ₃₅ Al ₅	755	801	46	0.59	100
実施例 2	Cu ₆₅ Zr ₄₀ Al ₅	723	800	77	0.62	100
実施例 3	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al ₅	701	770	69	0.60	100
実施例 4	Cu _{52.5} Zr _{42.5} Al ₅	709	781	72	0.61	100
実施例 5	Cu ₅₅ Zr _{42.5} Al _{2.5}	705	773	68	0.61	100
実施例 6	Cu ₆₅ Hf ₄₀ Al ₅	777	862	85	0.60	100
実施例 7	Cu ₅₀ Hf ₄₅ Al ₅	765	857	92	0.62	100
実施例 8	Cu _{52.5} Hf ₄₀ Al _{7.5}	779	834	55	0.63	100
実施例 9	Cu ₅₀ Hf _{42.5} Al _{7.5}	780	835	55	0.63	100
実施例 10	Cu _{52.5} Hf _{42.5} Al ₅	771	849	78	0.59	100
実施例 11	Cu ₅₅ Hf _{37.5} Al _{7.5}	776	863	87	0.61	100
実施例 12	Cu ₅₅ Hf _{42.5} Al _{2.5}	769	831	62	0.60	100
実施例 13	Cu ₅₀ Zr _{22.5} Hf _{22.5} Al ₅	790	843	53	0.62	100
実施例 14	Cu ₅₅ Zr ₄₀ Ga ₅	730	780	50	0.61	100
実施例 15	Cu _{52.5} Zr _{42.5} Ga ₅	728	777	49	0.61	100
実施例 16	Cu ₅₅ Hf ₄₀ Ga ₅	784	847	63	0.58	100
実施例 17	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al _{2.5} Ga _{2.5}	728	792	64	0.61	100
実施例 18	Cu ₅₀ Zr ₄₀ Al ₅ Nb ₅	721	771	50	0.61	100
実施例 19	Cu ₅₀ Zr ₄₀ Al ₅ Au ₅	735	815	80	0.61	100
実施例 20	Cu ₅₀ Zr ₄₀ Al ₅ Y ₅	721	795	74	0.61	100
実施例 21	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al _{2.5} Sn _{2.5}	707	785	78	0.61	100
実施例 22	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al _{2.5} B _{2.5}	713	792	79	0.61	100
比較例 1	Cu ₇₀ Zr ₂₀ Al ₁₀	—	—	—	—	50<
比較例 2	Cu ₇₀ Hf ₂₀ Al ₁₀	—	—	—	—	50<
比較例 3	Cu ₅₅ Zr ₂₀ Al ₅ Ni ₁₀	—	—	—	—	50<
比較例 4	Cu ₆₀ Al ₄₀	—	—	—	—	10<
比較例 5	Cu ₆₀ Zr ₃₀ Ti ₁₀	713	750	37	0.61	100
比較例 6	Cu ₆₀ Hf ₂₀ Ti ₂₀	730	768	38	0.61	100
比較例 7	Cu ₆₀ Zr ₄₀	717	777	60	0.60	91
比較例 8	Cu ₅₅ Zr ₃₅ Ti ₁₀	680	727	47	0.59	100
比較例 9	Cu ₅₃ Zr ₃₅ Al ₅ Ti ₇	721	753	32	0.54	50<

1 (表 2)

	合金組成 (at%)	σ_f (MPa)	E (GPa)	Hv
実施例 1	Cu ₆₀ Zr ₃₅ Al ₅	2265	119	603
実施例 2	Cu ₅₅ Zr ₄₀ Al ₅	2220	116	581
実施例 3	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al ₅	1921	103	546
実施例 4	Cu _{52.5} Zr _{42.5} Al ₅	2130	112	568
実施例 5	Cu ₅₅ Zr _{42.5} Al _{2.5}	2200	115	589
実施例 6	Cu ₅₅ Hf ₄₀ Al ₅	2280	121	642
実施例 7	Cu ₅₀ Hf ₄₅ Al ₅	2320	134	667
実施例 8	Cu _{52.5} Hf ₄₀ Al _{7.5}	2295	128	644
実施例 9	Cu ₅₀ Hf _{42.5} Al _{7.5}	2372	137	673
実施例 10	Cu _{52.5} Hf _{42.5} Al ₅	2380	137	681
実施例 11	Cu ₅₅ Hf _{37.5} Al _{7.5}	2412	140	698
実施例 12	Cu ₅₅ Hf _{42.5} Al _{2.5}	2253	131	692
実施例 13	Cu ₅₀ Zr _{22.5} Hf _{22.5} Al ₅	2130	122	591
実施例 14	Cu ₅₅ Zr ₄₀ Ga ₅	2219	117	585
実施例 15	Cu _{52.5} Zr _{42.5} Ga ₅	2100	115	571
実施例 16	Cu ₅₅ Hf ₄₀ Ga ₅	2275	126	652
実施例 17	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al _{2.5} Ga _{2.5}	2205	115	691
実施例 18	Cu ₅₀ Zr ₄₀ Al ₅ Nb ₅	2312	131	674
実施例 19	Cu ₅₀ Zr ₄₀ Al ₅ Au ₅	2245	117	597
実施例 20	Cu ₅₀ Zr ₄₀ Al ₅ Y ₅	2180	114	575
実施例 21	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al _{2.5} Sn _{2.5}	2200	112	561
実施例 22	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al _{2.5} B _{2.5}	2175	119	559
比較例 1	Cu ₇₀ Zr ₂₀ Al ₁₀	-	-	564
比較例 2	Cu ₇₀ Hf ₂₀ Al ₁₀	-	-	624
比較例 3	Cu ₆₅ Zr ₃₀ Al ₅ Ni ₁₀	-	-	578
比較例 4	Cu ₆₀ Ti ₄₀	-	-	566
比較例 5	Cu ₆₀ Zr ₃₀ Ti ₁₀	2115	114	504
比較例 6	Cu ₆₀ Hf ₂₀ Ti ₂₀	2080	135	620
比較例 7	Cu ₆₀ Zr ₄₀	1880	102	555
比較例 8	Cu ₅₅ Zr ₃₅ Ti ₁₀	1860	112	567
比較例 9	Cu ₃₅ Zr ₃₅ Al ₅ Ti ₇	-	-	584

1 表1より明らかなように、各実施例の非晶質合金は、Cu-Hf又はCu-Zr-Hf系非
晶質合金系では ΔT_x が50K以上と大きく、Cu-Zr系非晶質合金でも ΔT_x は45
K以上であり、0.57以上の換算ガラス化温度を示し、直径1mmの非晶質合
金棒が容易に得られた。

5 これに対して、比較例1～2の合金は、(Al,Ga)が10原子%であるが、(Zr,
Hf)が35原子%未満であり、大きなガラス形成能を持っておらず、直径1mm
の棒状非晶質合金が得られなかった。

10 比較例3の合金は、Ni量が5原子%を超え、大きなガラス形成能を持っておら
ず、直径1mmの棒状非晶質合金が得られなかった。比較例4の合金は、基本元
素(Zr,Hf)が存在しておらず、直径1mmの棒状非晶質合金が得られなかった。

15 比較例5及び比較例6の合金は、基本元素(Al,Ga)が存在しておらず、直径1
mmの棒状非晶質合金が得られたが、過冷却液体域が45K未満であり、良好な
加工性を持っていない。

20 比較例7及び8の合金は、Zrが35原子%以上であり、過冷却液体域が45K
以上であるが、良好な加工性を有するが、圧縮強度が小さい。

25 比較例9の合金は、Tiが5原子%を超えると、換算ガラス化温度Tg/Tlがかなり
低下したので直径1mmの棒状非晶質合金が得られなかった。

30 表2より明らかなように、各実施例の非晶質合金は、圧縮破断強度(σ_f :MPa)
が最小で1921、最大で2412であり、硬度(室温ビッカース硬度:Hv)
が最小で546、最大で698であり、ヤング率(E:Gpa)が最小で103、最
大で140であり、1900MPa以上の圧縮破断強度、500Hv以上のビッ
カース硬度及び100GPa以上のヤング率を示すことが分かる。

1 請 求 の 範 囲

1. (補正後) 式 : $Cu_{100-a-b}(Zr, Hf)_a(Al, Ga)_b$ [式中、 a, bは原子%で、 35原子% $\leq a \leq$ 50原子%、 2原子% $\leq b \leq$ 10原子%である] で示される組成 (ただし、 Cu50at%以上) を有する非晶質相を体積百分率で90%以上含み、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ (ただし、 T_x は、 結晶化開始温度、 T_g は、 ガラス遷移温度を示す。) の式で表わされる過冷却液体領域の温度間隔 ΔT_x が45K以上、 T_x が770K以上、 金型铸造法により直径又は厚さ1mm以上、 非晶質相の体積比率90%以上の棒材又は板材が得られ、 圧縮強度1900MPa以上、 ヤング率100GPa以上、 ビッカース硬さ500HV以上であることを特徴とするCu基非晶質合金。
2. (補正後) 式 : $Cu_{100-a-b}(Zr, Hf)_a(Al, Ga)_bM_cT_dQ_e$ [式中、 Mは、 Fe, Ni, Co, Ti, Cr, V, Nb, Mo, Ta, W, Be, 又は希土類元素よりなる群から選択される1種又は2種以上の元素、 Tは、 Ge, Sn, Si, B元素よりなる群から選択される1種又は2種以上の元素、 Qは、 Ag, Pd, Pt, Au元素よりなる群から選択される1種又は2種以上の元素であり、 a, b, c, d, eは原子%で、 35原子% $\leq a \leq$ 50原子%、 2原子% $\leq b \leq$ 10原子%、 0 $\leq c \leq$ 5%、 0 $\leq d \leq$ 5%、 0 $\leq e \leq$ 5%、 $b+c+d+e \leq 15$ 原子%である] で示される組成 (ただし、 Cu50at%以上) を有する非晶質相を体積百分率で90%以上含み、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ (ただし、 T_x は、 結晶化開始温度、 T_g は、 ガラス遷移温度を示す。) の式で表わされる過冷却液体領域の温度間隔 ΔT_x が45K以上、 T_x が770K以上、 金型铸造法により直径又は厚さ1mm以上、 非晶質相の体積比率90%以上の棒材又は板材が得られ、 圧縮強度1900MPa以上、 ヤング率100GPa以上、 ビッカース硬さ500HV以上であることを特徴とするCu基非晶質合金。



PATENT COOPERATION TREATY

Translation

PCT
 INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference E05110PCT	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP2003/007460	International filing date (<i>day/month/year</i>) 12 June 2003 (12.06.2003)	Priority date (<i>day/month/year</i>) 30 August 2002 (30.08.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C22C 45/00, 9/00		
Applicant JAPAN SCIENCE AND TECHNOLOGY CORPORATION		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.

This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 5 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I Basis of the report
- II Priority
- III Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV Lack of unity of invention
- V Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI Certain documents cited
- VII Certain defects in the international application
- VIII Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 03 September 2003 (03.09.2003)	Date of completion of this report 18 February 2004 (18.02.2004)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- the international application as originally filed
 the description:

pages _____ 1-6, 8, 12 _____, as originally filed
 pages _____ 7, 9-11 _____, filed with the demand
 pages _____ , filed with the letter of _____

- the claims:

pages _____ , as originally filed
 pages _____ 1, 2 _____, as amended (together with any statement under Article 19)
 pages _____ , filed with the demand
 pages _____ , filed with the letter of _____

- the drawings:

pages _____ 1-3 _____, as originally filed
 pages _____ , filed with the demand
 pages _____ , filed with the letter of _____

- the sequence listing part of the description:

pages _____ , as originally filed
 pages _____ , filed with the demand
 pages _____ , filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
 the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
 the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- contained in the international application in written form.
 filed together with the international application in computer readable form.
 furnished subsequently to this Authority in written form.
 furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
 The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
 The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. The amendments have resulted in the cancellation of:

- the description, pages _____
 the claims, Nos. _____
 the drawings, sheets/fig. _____

5. This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP 03/07460

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1, 2	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1, 2	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1, 2	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

Document 1: WO 02/053791 A1 (Japan Science and Technology Corp.), 11 July 2002

Document 2: JP 9-20968 A (The Research Institute for Electric and Magnetic Materials), 21 January 1997

Document 3: WO 00/26425 A1 (Japan Science and Technology Corp.), 11 May 2000

The invention that is set forth in claims 1 and 2 is not disclosed in any of the documents that are cited in the international search report; therefore, it is novel.

Specifically, the feature of increasing the workability, strength and young's modulus of glass by adding a predetermined amount of Al and/or Ga to a Cu-(Zr, Ti) based glass alloy is not disclosed in any of the documents.